

日本国特許庁

JAPAN PATENT OFFICE

10/507007
PCT/J-P-03/02712
Rec PCT/PTO 07 SEP 2004
03.04.03 #2

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出願年月日

Date of Application:

2002年 3月 7日

出願番号

Application Number:

特願2002-062653

[ST.10/C]:

[JP2002-062653]

出願人

Applicant(s):

株式会社資生堂

REC'D 05 MAY 2003

WIPO

PCT

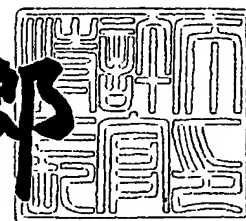
**PRIORITY
DOCUMENT**

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2003年 2月28日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

太田信一郎



出証番号 出証特2003-3011375

Best Available Copy

【書類名】 特許願

【整理番号】 SS1520

【提出日】 平成14年 3月 7日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 A61K 7/02

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市都筑区早渕2丁目2番1号 株式会社資
生堂 リサーチセンター（新横浜）内

【氏名】 小川 克基

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市都筑区早渕2丁目2番1号 株式会社資
生堂 リサーチセンター（新横浜）内

【氏名】 城市 京子

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市都筑区早渕2丁目2番1号 株式会社資
生堂 リサーチセンター（新横浜）内

【氏名】 宮本 剛

【特許出願人】

【識別番号】 000001959

【氏名又は名称】 株式会社 資生堂

【代表者】 池田 守男

【代理人】

【識別番号】 100092901

【弁理士】

【氏名又は名称】 岩橋 祐司

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 015576

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9800935

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 複合粉末、それを配合したメイクアップ化粧料、及び複合粉末の製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 薄片状基板粉末と、

該基板粉末の表面に突起状に付着した硫酸バリウム粒子を含むことを特徴とする複合粉末。

【請求項 2】 請求項 1 記載の粉末において、前記硫酸バリウム粒子は薄片状であり、且つ該薄片の周縁部を接点として前記基板粉末の表面に付着し、前記基板粉末の表面に対して、角度を有するように付着したことを特徴とする複合粉末。

【請求項 3】 請求項 1 または 2 記載の粉末において、前記基板粉末は干渉色を発現することを特徴とする複合粉末。

【請求項 4】 請求項 3 記載の粉末において、前記基板粉末は雲母チタンであることを特徴とする複合粉末。

【請求項 5】 請求項 4 記載の粉末において、前記硫酸バリウム粒子は略四角形状の薄片であり、且つ該薄片の周縁部を接点として前記基板粉末の表面に付着し、前記基板粉末の表面に対して角度を有するように付着したことを特徴とする複合粉末。

【請求項 6】 請求項 5 記載の粉末において、前記基板粉末の表面に、略均一な粒子径の硫酸バリウム粒子が、その粒子間隔が略均一であるように付着したことを特徴とする複合粉末。

【請求項 7】 請求項 1 ～ 6 のいずれかに記載の粉末において、硫酸バリウム粒子の付着率が前記基板に対して 15 ～ 100 質量%であることを特徴とする複合粉末。

【請求項 8】 請求項 1 ～ 7 のいずれかに記載の複合粉末を配合したことを特徴とするメイクアップ化粧料。

【請求項 9】 薄片状基板粉末のスラリー溶液に種粒子を共存させ、該溶液

にバリウムイオン溶液と硫酸イオン溶液を添加して反応させることにより、前記種粒子を核として硫酸バリウムを結晶成長させ、生成した硫酸バリウム粒子を前記基板粉末の表面に付着させることを特徴とする複合粉末の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は複合粉末、それを配合したメイクアップ化粧料、及び複合粉末の製造方法、特に肌の凹凸、色彩的な欠点の補正及び自然な仕上りの改良に関する。

【0002】

【従来の技術】

従来、素肌の毛穴や小じわなどの肌の物理的な凹凸を補正する方法として、球状粉末の拡散反射によるボカシ効果が用いられてきた。

【0003】

特に最近ではこのような効果を得る目的で、タルク、マイカ、アルミナ、硫酸バリウム等の薄片状粉末の表面上に微小な球状樹脂粉末を均一に複合化した複合粉末や、球状シリカ粒子の表面に酸化チタン層とシリカ層を設けて光の屈折率を高めることにより光拡散性を向上させ、ボカシ効果を高めた複合粉体の開発も行われている。

【0004】

一方、素肌のくすみやしみ、そばかす、赤味、目の回りのくま等に例示される色彩的な欠点を補正する方法としては、主に屈折率が2.69の強い隠蔽性及び着色力がある酸化チタン顔料が用いられてきた。

【0005】

また、このように色彩的な欠点を補正する方法としては、粉末の分光特性による補正が有効であることも知られている。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、球状粉末の拡散反射によるボカシ効果では毛穴や小じわなどの肌の凹凸を補正することができ、化粧肌の均一な仕上りの観点からはやや満足さ

れているものの、肌の色彩的な欠点について十分な補正を与えるものではない。

【0007】

一方、酸化チタン顔料を使用することにより、肌の色彩的な欠点を隠蔽して見えなくすることは可能であるが、その質感は光沢のないマットな状態であり、また高い屈折率による強い光散乱性からファンデーションの仕上がりが青白くなり決して自然な仕上がりを与えるものではなかった。さらに、透明感が感じられず実際の素肌とはかけ離れた異質な印象しか与えなかった。

【0008】

この問題を解決するために、酸化チタンに酸化鉄をドーピングし、黄橙色に着色することで肌に自然に馴染んだ仕上りを目指した粉末が開発（特開平7-3181）されているが、仕上りを自然な印象に見せる効果に一定の寄与はするものの、問題を十分に解決したものとはいえなかった。

【0009】

さらには、実際の素肌に近い仕上りを得るために皮膚組織の構造に着目した粉体開発も行われているが、複雑な皮膚組織を模倣することには限界があり、自然な仕上りが得られないばかりか、隠蔽性も低いために肌のくすみや色むら等の色彩的な欠点をカバーしきれず、十分な効果を期待できないのが現状である。

【0010】

そして、肌の色彩的な欠点を補正するためには粉末の分光特性による補正が自然に補正する方法として最も有効であることが知られており、実際に干渉系雲母チタンによるこのような補正がメイクアップ化粧料においてなされている。しかしながら、雲母チタンは表面反射が強いためにチカチカしたような見え方に化粧肌が仕上がり、毛穴や小じわなどの肌の凹凸も目立つことから自然で美しい仕上りを得ることは大変難しかった。

本発明は前記従来技術に鑑みなされたものであり、その目的は化粧料に配合することにより肌の凹凸や色彩的な欠点を補正すると共に自然な仕上りを与える複合粉末、それを配合したメイクアップ化粧料、及び複合粉末の製造方法を提供することにある。

【0011】

【課題を解決するための手段】

本発明者等は上記課題に鑑み鋭意検討した結果、薄片状基板粒子の表面に突起状の硫酸バリウム粒子を一定量付着した複合粉末をメイクアップ化粧料に配合することにより、肌の凹凸が補正されて自然な仕上りが得られることを見出し、さらに薄片状基板粒子として干渉系雲母チタンを用い、その表面に突起状の硫酸バリウム粒子を一定量付着した複合粉末をメイクアップ化粧料に配合することにより、肌の凹凸及び肌の色彩的な欠点を補正すると共に、素肌の光学特性に近似した透明感のある自然な仕上りが得られることを見出し、本発明を完成するに至った。

すなわち、本発明の複合粉末は、薄片状基板粉末と、該基板粉末の表面に突起状に付着した硫酸バリウム粒子を含むことを特徴とする。

【0012】

また、前記粉末において、前記硫酸バリウム粒子は薄片状であり、且つ該薄片の周縁部を接点として前記基板粉末の表面に付着し、前記基板粉末の表面に対して角度を有するように付着していることが好適である。

【0013】

また、前記粉末において、前記基板粉末は干渉色を発現することが好適である。

また、前記粉末において、干渉色を発現する基板粉末としては雲母チタンが例示される。

また、前記粉末において、前記硫酸バリウム粒子は略四角形状の薄片であり、且つ該薄片の周縁部を接点として前記基板粉末の表面に付着し、前記基板粉末の表面に対して角度を有するように付着していることが好適である。

また、前記粉末において、前記基板粉末の表面に略均一な粒子径の硫酸バリウム粒子が、その粒子間隔が略均一であるように付着していることが好適である。

【0014】

また、前記粉末において、硫酸バリウム粒子の付着率が前記基板に対して15～100質量%であることが好適である。

【0015】

また、本発明のメイクアップ化粧料は、前記複合粉末を配合したことを特徴とする。

【 0 0 1 6 】

また、本発明の複合粉末の製造方法は、薄片状基板粉末のスラリー溶液に種粒子を共存させ、該溶液にバリウムイオン溶液と硫酸イオン溶液を添加して反応させることにより、前記種粒子を核として硫酸バリウムを結晶成長させ、生成した硫酸バリウム粒子を前記基板粉末の表面に付着させることを特徴とする。

【 0 0 1 7 】

【発明の実施の形態】

以下、本発明の好適な実施形態について説明する。

本発明の製造方法により得られる粉末は、薄片状粉末を基板として、その表面に突起状の硫酸バリウム粒子が一定量付着した複合粉末である。この粉末をメイクアップ化粧料に配合すれば、薄片状粉末の表面に突起状に付着した硫酸バリウム粒子の光拡散性により肌の凹凸が均一に補正され、自然で美しい仕上がりが得られる。

【 0 0 1 8 】

また、基板粉末の表面に硫酸バリウム粒子が突起状に付着しているので、粉末と肌との接点が少なくなつて使用感触が軽くなり、これを化粧料に配合して使用する際には、板状であるためフィット感に優れながら、且つなめらかに肌へ均一に広がるため、使用感触の点においても好ましい効果が得られる。

【 0 0 1 9 】

上記した「突起状」の硫酸バリウム粒子の形状としては、使用する基板粉末や製造条件により種々の形状のものが得られるが、例えば図 1 4 に示したように、薄片状であり且つ該薄片の周縁部を接点として前記基板粉末の表面と付着し、前記基板粉末の表面に対して角度を有するように付着したものが得られる。

【 0 0 2 0 】

このような複合粉末の基板として使用される薄片状粉末としては、雲母、タルク、セリサイト、カオリン、酸化チタン、シリカ、アルミナ、酸化鉄、窒化ホウ素、合成雲母、合成タルク、ハイドロキシアパタイト、硫酸バリウム等が例示さ

れ、平均粒子径が $1 \sim 150 \mu\text{m}$ のものであれば特に限定されない。

【0021】

また、硫酸バリウムの付着率が前記基板に対して $15 \sim 100$ 質量%であることが好適である。

【0022】

さらに、雲母チタン等の干渉色を発現する薄片状粉末を基板として、本発明の方法によりその表面に突起状の硫酸バリウム粒子を一定量付着して得られた複合粉末は、これをメイクアップ化粧料に配合することにより、薄片状粉末の干渉色による分光特性とその表面に突起状に付着した硫酸バリウム粒子の光拡散性により肌の凹凸及び色彩的な欠点を均一に補正することができる。

【0023】

さらに、突起状に硫酸バリウム粒子を付着することで粉末の拡散反射特性が向上するため、雲母チタン等に特有の強い表面反射光を低減し、また硫酸バリウムの屈折率(1.64)が肌の屈折率(1.56)に比較的近いいため、透明感のある自然で美しい仕上がりが可能となる。

【0024】

すなわち、雲母チタン等の干渉色を発現する層状構造粉末の干渉光は青色、黄色、緑色、赤色、紫色などがあり、肌に対応した好ましい干渉色を選択することで肌の色彩的な欠点を補正しつつ、雲母チタン等に特有のチカチカ感を生じずに自然で美しい仕上がりが可能となる。

【0025】

例えば、くすんだ肌や目の回りのくまなどはメラニンやうっ血により吸収された黄色～赤色の光が色彩的に不足しているため赤～橙色の反射干渉光により補正することで肌を健康的に明るく透明感のある仕上がりにすることができる。

【0026】

また、最近増えた敏感肌やアトピー肌、ニキビ肌等の赤味の強い肌には血液中のヘモグロビン色素に吸収され不足している緑色の反射干渉光により赤味をやわらげた自然な仕上がりに補正することができる。また、しみやそばかす等の色ムラの多い肌の場合には濃いメラニン色素により吸収された黄色の反射干渉光を補

正することによって肌を自然に均一化した美しい化粧肌が得られる。

【0027】

干渉色を発現する層状構造粉末の基板として使用される薄片状粉末としては、雲母チタン、低次酸化チタン被覆雲母、酸化鉄被覆雲母チタン等が例示され、平均粒子径が $1 \sim 150 \mu\text{m}$ のものであれば特に限定されない。

【0028】

また、基板表面に付着される硫酸バリウムの付着率は、干渉色を発現する基板に対して $15 \sim 100$ 質量%であることが好適である。

【0029】

基板として雲母チタンを用い、本発明の製造方法により得られた複合粉末表面のSEM写真を図1に示す。このように、その表面構造は略四角形状の薄片である硫酸バリウム粒子がその周縁部を接点として前記基板粉末の表面に付着し、前記基板粉末の表面に対して角度を有するように付着した構造であり、基板粉末の表面に、その粒子間隔が略均一であるように付着している。このような付着構造は基板として雲母チタンを用いた場合に特有なものであった。

【0030】

突起状の粒子が付着した薄片状粉末を得るために、本発明の製造方法では粉末製造時に種粒子を使用することを特徴としている。すなわち、例えばバリウムイオン溶液と硫酸イオン溶液の混合による反応時に種粒子として金属酸化物等の微粒子を共存させることで、それが硫酸バリウムの結晶成長の核となり、種粒子から硫酸バリウムが結晶成長して形成された粒子が基板粉末上に付着した構造が得られる。以下、本発明に係る複合粉末の製造方法を説明する。

【0031】

複合粉末の原料として使用するバリウム化合物は、水、アルコールなどの溶媒中でバリウムイオンを生じるものであればよく、その種類は特に限定されない。

このようなバリウム化合物としては、水酸化バリウム、塩化バリウム、硫化バリウム、硝酸バリウム、酢酸バリウム等が例示される。このうち、副生成物の処理が容易であることから、塩化バリウム、水酸化バリウムが好適である。

【0032】

複合粉末の原料として使用する硫酸化合物は、水、アルコールなどの溶媒中で硫酸イオンを生じるものであればよく、その種類は特に限定されない。

このような硫酸化合物としては硫酸、硫酸ナトリウム、硫酸水素ナトリウム、硫酸アンモニウム、硫酸カリウム、硫酸リチウム等が例示される。このうち、硫酸、硫酸ナトリウム、硫酸アンモニウムが特に好適である。

【0033】

バリウム化合物、硫酸化合物を反応させる際には、バリウム化合物、硫酸化合物をそれぞれ水、またはアルコールに溶解させたバリウムイオン溶液、硫酸イオン溶液をあらかじめ調整する。反応時のバリウムイオン濃度、硫酸イオン濃度は希薄である方が生成する硫酸バリウムの使用感触が良好となる。

【0034】

バリウムイオン溶液、硫酸イオン溶液の濃度は、ともに通常 $0.01 \text{ mmol/L} \sim 1 \text{ mol/L}$ に調製される。好ましくは、 $1 \text{ mmol/L} \sim 100 \text{ mmol/L}$ の範囲である。濃度がこの範囲より小さい場合、工業的製法として効率が悪くなる。また、濃度がこの範囲より大きい場合には、過飽和度が大きいために核発生が多くなり、微少な粒子が多数発生するため凝集等が起こり、化粧料用途には使用しにくくなる。

また、バリウムイオン溶液及び硫酸イオン溶液を反応時に経時的に混和すれば反応溶液中では実質調製時より低い濃度で反応が進行することになる。

【0035】

反応時に共存させる種粒子としては、酸化チタン、酸化亜鉛、アルミナ、水酸化アルミニウム、シリカ、酸化鉄等の粒子が使用できる。これらの粒子径は $0.02 \mu\text{m} \sim 2 \mu\text{m}$ 、好ましくは $0.1 \mu\text{m} \sim 0.5 \mu\text{m}$ であり、これらの微粒子が硫酸バリウムの結晶成長の核となり、基板粉末表面に対する硫酸バリウムの均一な付着を促すことができる。

【0036】

また、粒子の結晶成長の制御を目的として、金属イオンを添加することができる。粒子の結晶成長を制御することで、光学的な拡散反射を増強したり、或いは角度依存的な光沢感の変化を付与することができる。また、雲母チタンを基板と

した場合に金属イオンを添加すると、前述した略四角形の薄片状以外の形態に結晶成長させることもできる。

【0037】

金属イオンとしては、リチウムイオン、ナトリウムイオン、カリウムイオン、マグネシウムイオン、カルシウムイオン、亜鉛イオン、アルミニウムイオンが例示される。これらは、単独或いは2種以上組合わせて使用される。それぞれの金属イオンは、該当する金属を含む塩化合物の水溶液またはアルコール溶液として与えられる。

【0038】

該金属イオンは、バリウムイオンに対して、0.001～10当量の範囲で添加される。0.001当量未満では、硫酸バリウム粒子の結晶成長の制御が困難となる。また、10当量を超えると、生成する硫酸バリウムが凝集を起こしてしまい、基板への均一な付着ができず凝集状態となり使用感を低下させる等の為、化粧料用途として使用できなくなる。

【0039】

金属イオンを与えるための金属塩としては、例えば水酸化リチウム、塩化リチウム、硝酸リチウム、炭酸リチウム、酢酸リチウム等のリチウム塩；水酸化ナトリウム、塩化ナトリウム、硝酸ナトリウム、炭酸ナトリウム、酢酸ナトリウム等のナトリウム塩；水酸化カリウム、塩化カリウム、硝酸カリウム、炭酸カリウム、酢酸カリウム等のカリウム塩；水酸化マグネシウム、塩化マグネシウム、硝酸マグネシウム、炭酸マグネシウム、酢酸マグネシウム等のマグネシウム塩；水酸化カルシウム、塩化カルシウム、硝酸カルシウム、炭酸カルシウム、酢酸カルシウム等のカルシウム塩；水酸化亜鉛、塩化亜鉛、硝酸亜鉛、炭酸亜鉛、酢酸亜鉛等の亜鉛塩；水酸化アルミニウム、塩化アルミニウム、硝酸アルミニウム、炭酸アルミニウム、酢酸アルミニウム等のアルミニウム塩が使用される。

【0040】

また、これらの金属イオンの他、同じく粒子の結晶成長の制御を目的として、酢酸、グルタミン酸、アスパラギン酸等の酸を反応溶液に共存させることもできる。

【 0 0 4 1 】

上述のように調製したバリウムイオン溶液と硫酸イオン溶液を、種粒子、及び必要に応じて添加した金属イオンや酸を含む基板粉末のスラリー水溶液に添加して反応させる。反応終了後の溶液について濾過水洗、粉碎等の処理を行い本発明の複合粉末が得られる。

【 0 0 4 2 】

以下に、本発明の製造方法の代表的な実施形態を示す。

<実施形態 1>

雲母チタンのスラリー水溶液に、種粒子として使用するアルミナ微粒子を超音波分散した溶液を添加して攪拌混合した後、上述のように調製したバリウムイオン溶液と硫酸イオン溶液を同時に添加する。この際バリウムイオンに対する硫酸イオンのモル比は、 $1/2 \sim 2/1$ の範囲になるようにする。反応温度としては、 $10 \sim 100^{\circ}\text{C}$ が好適であり、 $25 \sim 100^{\circ}\text{C}$ がさらに好適である。

【 0 0 4 3 】

<実施形態 2>

雲母チタンのスラリー水溶液に、種粒子として使用するシリカ微粒子を超音波分散した溶液を添加して攪拌混合した後、特定の金属イオンを含む金属塩化合物溶液を添加する。調整したスラリー溶液中に上述のように調製したバリウムイオン溶液と硫酸イオン溶液を同時に添加する。この際バリウムイオンに対する硫酸イオンのモル比は、 $1/2 \sim 2/1$ の範囲になるようにする。反応温度としては、 $10 \sim 100^{\circ}\text{C}$ が好適であり、 $25 \sim 100^{\circ}\text{C}$ がさらに好適である。

【 0 0 4 4 】

本発明の複合粉末をメイクアップ化粧料に配合する場合、配合量としては特に限定されないが、例えば体質顔料として多量配合することにより肌の凹凸補正効果が得られる。

【 0 0 4 5 】

但し、基板として雲母チタン等の干渉色を有する顔料を使用する場合、くすみやしみ・そばかす、赤味、目の回りのくまなど肌の色彩的な欠点を補正する効果を持たせるためには化粧料に対して 1 質量%以上配合することが好ましい。また

、20質量%以上配合すると干渉光が強調されすぎて不自然な仕上がりになるなどの影響があり好ましくない。また、上述の光学的な色彩補正や新しい質感等を考慮した場合には3質量%以上が化粧効果を付与できるためさらに好ましい。

【0046】

また、本発明の複合粉末に対して、その効果を損なわない範囲で、通常の化粧料顔料に用いられる処理剤、例えばシリコン、金属セッケン、レシチン、アミノ酸、コラーゲン、フッ素化合物等で表面処理したものを用いることもできる。

【0047】

本発明の化粧料には他の粉末成分として、酸化チタン、酸化亜鉛、ベンガラ、黄酸化鉄、黒酸化鉄、群青、酸化セリウム、タルク、マイカ、セリサイト、カオリン、ベントナイト、クレー、ケイ酸、無水ケイ酸、ケイ酸マグネシウム、ステアリン酸亜鉛、含フッ素金雲母、合成タルク、硫酸バリウム、硫酸マグネシウム、硫酸カルシウム、チッ化ホウ素、オキシ塩化ビスマス、アルミナ、酸化ジルコニウム、酸化マグネシウム、酸化クロム、カラミン、炭酸マグネシウムおよびこれらの複合体等の無機粉体；シリコン粉末、シリコン弾性粉末、ポリウレタン粉末、セルロース粉末、ナイロン粉末、PMMA粉末、スターチ、ポリエチレン粉末およびこれらの複合体等の有機粉体を1種または2種以上必要に応じて配合することができる。

【0048】

また、本発明の化粧料には油性成分として、流動パラフィン、スクワラン、エステル油、ジグリセライド、トリグリセライド、パーフルオロポリエーテル、ワセリン、ラノリン、セレシン、カルナバロウ、固型パラフィン、脂肪酸、多価アルコール、シリコン樹脂、フッ素樹脂、アクリル樹脂、ビニルピロリド等を1種または2種以上必要に応じて配合することができる。

【0049】

また、本発明の化粧料には色素、pH調整剤、保湿剤、増粘剤、界面活性剤、分散剤、安定化剤、着色剤、防腐剤、酸化防止剤、紫外線吸収剤、香料等も本発明の目的を達する範囲内で適宜配合することができる。

【0050】

本発明のメイクアップ化粧料は通常の方法で製造され、剤型としては乳化ファンデーション、パウダーファンデーション、油性ファンデーション、アイシャドウ、チークカラー、ボディーパウダー、パヒュームパウダー、ベビーパウダー、フェースパウダー等が例示される。

【0051】

【実施例】

以下、実施例により本発明をさらに詳細に説明する。なお、本発明はこれによって限定されるものではなく、化粧料の実施例における各成分の配合量は化粧料全量に対する質量％で表す。

本発明の複合粉末を各種条件で製造した（実施例1～16）。

実施例1

容量3000mlの丸底セパラブルフラスコに、基板として用いる粒子径約12 μ mの赤色干渉系雲母チタン50gを測り、イオン交換水400mlを加えて攪拌混合した。別途、種粒子として使用する粒子径約0.5 μ mのアルミナ粒子4g（雲母チタンに対して8質量％）を100mlの水溶液中で超音波分散し調整した後、前記雲母チタンのスラリー水溶液に添加した。雲母チタンのスラリー水溶液の液温を60℃とした後、640mmol/L塩化バリウム水溶液150mlと640mmol/L硫酸ナトリウム水溶液150mlを別々に添加した。滴下と同時に白色の硫酸バリウムが生成・析出し、2時間反応を行った。

【0052】

反応溶液を室温まで冷却して、得られた固形生成物は、沈降させ、濾過水洗をして塩を除去した後、120℃で12時間乾燥した。乾燥後、粉碎処理を施し実施例1の赤色干渉系白色粉末を得た。その粉末表面のSEM写真を図1（同図Bは同図Aの拡大像）に示す。また、得られた粉末の硫酸バリウム付着率は、基板の雲母チタンに対して45質量％であった。

【0053】

実施例2～4

容量3000mlの丸底セパラブルフラスコに、基板として用いる粒子径約12 μ mの各種干渉系雲母チタン50g（実施例2：黄色干渉系、実施例3：緑色

干渉系、実施例 4：青色干渉系）を測り、イオン交換水 300 ml を加えて攪拌混合した。別途、種粒子として使用する粒子径約 0.5 μ m のアルミナ粒子（雲母チタンに対して 1～12 質量%）を 100 ml の水溶液中で超音波分散し調整した後、前記雲母チタンのスラリー水溶液に添加した。雲母チタンのスラリー水溶液の液温を 60℃ とした後、640 mmol/L 塩化バリウム水溶液 150 ml と、640 mmol/L 硫酸ナトリウム水溶液 150 ml を別々に添加した。滴下と同時に白色の硫酸バリウムが生成・析出し、2 時間反応を行った。

【0054】

反応溶液を室温まで冷却して、得られた固形生成物を沈降させ、濾過水洗をして塩を除去した後、120℃ で 12 時間乾燥した。乾燥後、粉碎処理を施し実施例 2～4 の各種干渉系白色粉末（実施例 2：黄色干渉系、実施例 3：緑色干渉系、実施例 4：青色干渉系）を得た。また、得られた粉末の硫酸バリウム付着率は、基板の雲母チタンに対して 45 質量%であった。

【0055】

実施例 5～7

容量 3000 ml の丸底セパラブルフラスコに、基板として用いる粒子径約 12 μ m の赤色干渉系雲母チタン 50 g を測り、イオン交換水 300 ml を加えて攪拌混合した。別途、種粒子として使用する粒子径約 0.5 μ m のアルミナ粒子（雲母チタンに対して 1～12 質量%）を 100 ml の水溶液中で超音波分散し調整した後、前記雲母チタンのスラリー水溶液に添加した。雲母チタンのスラリー水溶液の液温を 60℃ とした後、硫酸バリウムの付着率が基板雲母チタンに対して 15 質量%（実施例 5）、30 質量%（実施例 6）、100 質量%（実施例 7）となるように各濃度の塩化バリウム水溶液 150 ml と硫酸ナトリウム水溶液 150 ml を調整し別々に添加した。滴下と同時に白色の硫酸バリウムが生成・析出し、2 時間反応を行った。

【0056】

反応溶液を室温まで冷却して、得られた固形生成物を、沈降させ、濾過水洗をして塩を除去した後、120℃ で 12 時間乾燥した。乾燥後、粉碎処理を施し実施例 5～7 の赤色干渉系白色粉末を得た。その粉末表面の SEM 写真（実施例 5

， 7) を図 2， 3 に示す。

【 0 0 5 7 】

実施例 8 ～ 1 0

容量 3 0 0 0 m l の丸底セパラブルフラスコに、基板として用いる粒子径約 1 2 μ m の赤色干渉系雲母チタン 5 0 g を測り、イオン交換水 3 0 0 m l を加えて攪拌混合した。別途、種粒子として使用する粒子径約 0 . 5 μ m のアルミナ粒子（雲母チタンに対して 1 ～ 1 2 質量 %）を 1 0 0 m l の水溶液中で超音波分散し調整した後、前記雲母チタンのスラリー水溶液に添加した。さらに金属イオンを共存させるために 9 6 4 m m o l / L - 各種塩化金属水溶液 1 0 0 m l （実施例 8 : マグネシウム、実施例 9 : カルシウム、実施例 1 0 : ナトリウム）を添加した。雲母チタンのスラリー水溶液の液温を 6 0 °C とした後、6 4 0 m m o l / L - 塩化バリウム水溶液 1 5 0 m l と 6 4 0 m m o l / L - 硫酸ナトリウム水溶液 1 5 0 m l を別々に添加した。滴下と同時に白色の硫酸バリウムが生成・析出し、2 時間反応を行った。

【 0 0 5 8 】

反応溶液を室温まで冷却して、得られた固形生成物を、沈降させ、濾過水洗をして塩を除去した後、1 2 0 °C で 1 2 時間乾燥した。乾燥後、粉碎処理を施し実施例 8 ～ 1 0 の赤色干渉系白色粉末を得た。その粉末表面の S E M 写真（実施例 8 ～ 1 0）を図 4 ～ 6 に示す。また、得られた粉末の硫酸バリウム付着率は、基板の雲母チタンに対して 4 5 質量 % であった。

【 0 0 5 9 】

実施例 1 1 ～ 1 3

容量 3 0 0 0 m l の丸底セパラブルフラスコに、基板として用いる粒子径約 1 2 μ m の赤色干渉系雲母チタン 5 0 g を測り、イオン交換水 3 0 0 m l を加えて攪拌混合した。別途、種粒子として使用する粒子径約 0 . 5 μ m のアルミナ粒子（雲母チタンに対して 1 ～ 1 2 質量 %）を 1 0 0 m l の水溶液中で超音波分散し調整した後、前記雲母チタンのスラリー水溶液に添加した。さらに各種酸を共存させるために 9 6 4 m m o l / L - 各種酸の水溶液（実施例 1 1 : 酢酸水溶液、実施例 1 2 : L - グルタミン酸ソーダ水溶液、実施例 1 3 : L - アスパラギン酸

ソーダ水溶液) 100 ml を添加した。雲母チタンのスラリー水溶液の液温を 60℃とした後、640 mmol/L-塩化バリウム水溶液 150 ml と 640 mmol/L-硫酸ナトリウム水溶液 150 ml を別々に添加した。滴下と同時に白色の硫酸バリウムが生成・析出し、2 時間反応を行った。

【0060】

反応溶液を室温まで冷却して、得られた固形生成物を、沈降させ、濾過水洗をして塩を除去した後、120℃で12時間乾燥した。乾燥後、粉碎処理を施し実施例11～13の赤色干渉系白色粉末を得た。その粉末表面のSEM写真(実施例11～13)を図7～9に示す。また、得られた粉末の硫酸バリウム付着率は基板の雲母チタンに対して、45質量%であった。

【0061】

実施例14～16

容量3000 ml の丸底セパラブルフラスコに、基板として用いる粒子径約12 μm のタルク(実施例14)または雲母(実施例15, 16) 50 g を測り、イオン交換水400 ml を加えて攪拌混合した。別途、種粒子として使用する粒子径約0.5 μm のアルミナ粒子(雲母チタンに対して1質量%)を100 ml の水溶液中で超音波分散し調整した後、前記雲母チタンのスラリー水溶液に添加した。雲母チタンのスラリー水溶液の液温を60℃とした後、7.85 g のL-塩化バリウム水溶液150 ml と4.57 g の硫酸ナトリウム水溶液150 ml を別々に添加した。滴下と同時に白色の硫酸バリウムが生成・析出し、3時間反応を行った。

【0062】

反応溶液を室温まで冷却して、得られた固形生成物を、沈降させ、濾過水洗をして塩を除去した後、150℃で12時間乾燥した。乾燥後、粉碎処理を施し実施例14～16の白色粉末を得た。その粉末表面のSEM写真(実施例14～16)を図10～12に示す。

【0063】

比較例1

比較例として、共存種粒子は一切添加せず、イオン交換水を適量調整した以外

は実施例 1 と同様の製法で白色粉末を得た。

【 0 0 6 4 】

上記実施例の複合粉末を配合した各種化粧料を、20名の女性パネラーに塗布し、肌の凹凸（素肌の毛穴や小じわ等）及び色彩的な欠点（くすみやしみ・そばかす、赤味、目の回りのくま等）を補正する効果、透明感、仕上りの自然さ、及び塗布時の使用感触（なめらかさ）について下記基準に基づき実用特性評価を行った。

【 0 0 6 5 】

実用特性評価基準

- ◎ 17名以上が良いと回答
- 12名～16名が良いと回答
- △ 9名～11名が良いと回答
- × 5名～8名が良いと回答
- ×× 4名以下が良いと回答

化粧料の処方と評価結果を以下に示す。

【 0 0 6 6 】

【表 1】

パウダーファンデーション

	実施例 17	比較例 2	比較例 3
セリサイト	17	17	17
合成マイカ	10	10	10
タルク	残余	残余	残余
赤色干渉系複合粉末（実施例 1）	8	—	—
複合粉末（比較例 1）	—	8	—
赤色干渉系雲母チタン	—	—	8
酸化チタン	10	10	10
ベンガラ	0.8	0.8	0.8
黄酸化鉄	2	2	2
黒酸化鉄	0.1	0.1	0.1

亜鉛華	2	2	2
シリコーン弾性粉末	2	2	2
ジメチルポリシロキサン	3	3	3
流動パラフィン	5	5	5
ワセリン	5	5	5
ソルビタンセスキイソステアレート	1	1	1
パラベン	適量	適量	適量
酸化防止剤	適量	適量	適量
香料	適量	適量	適量
肌の凹凸の補正効果	○	×	××
肌のくすみの補正効果	◎	△	○
仕上りの透明感	◎	△	△
仕上りの自然さ	○	△	×
使用感触（なめらかさ）	◎	○	△

【 0 0 6 7 】

表 1 から明らかなように、実施例 1 の複合粉末を配合した実施例 1 7 のファンデーションは、肌の凹凸や色彩的な欠点を補正すると共に透明感のある自然な仕上りを与えるものであった。さらに、使用感触においてもなめらかな軽い感触を有していた。

【 0 0 6 8 】

これに対し比較例 1 の複合粉末を配合した比較例 2 のファンデーションでは、肌の凹凸や色彩的な欠点が補正されず、さらに透明感のある自然な仕上りが得られなかった。また、干渉系雲母チタンを配合した比較例 3 のファンデーションでは、色彩的な欠点は補正されているものの、肌の凹凸が目立ち、チカチカ感があり透明感のある自然な仕上りが得られなかった。

【 0 0 6 9 】

【表 2】

パウダーファンデーション（水使用も可能な夏用粉末固型ファンデーション）

実施例 1 8 比較例 4 比較例 5

シリコーン処理セリサイト	1 8	1 8	1 8
シリコーン処理マイカ	残余	残余	残余
シリコーン処理タルク	1 5	1 5	1 5
シリコーン処理	8	—	—
黄色干渉系複合粉末（実施例 2）			
シリコーン処理複合粉末	—	8	—
（比較例 1）			
シリコーン処理	—	—	8
黄色干渉系雲母チタン			
シリコーン処理酸化チタン	8	8	8
ステアリン酸アルミ処理	6	6	6
微粒子酸化チタン			
シリコーン処理ベンガラ	1. 2	1. 2	1. 2
シリコーン処理黄酸化鉄	2. 5	2. 5	2. 5
シリコーン処理黒酸化鉄	0. 9	0. 9	0. 9
ポリウレタン粉末	2	2	2
パラベン	適量	適量	適量
ジメチルポリシロキサン	4	4	4
メチルフェニルポリシロキサン	3	3	3
オクチルメトキシシナメート	3	3	3
ポリエーテル変性シリコーン	2	2	2
酸化防止剤	適量	適量	適量
香料	適量	適量	適量
肌の凹凸の補正効果	○	×	××
肌のしみ、そばかすの補正効果	◎	△	△
仕上りの透明感	◎	△	×
仕上りの自然さ	○	△	×
使用感触（なめらかさ）	◎	○	△

【 0 0 7 0 】

表2から明らかなように、実施例2の複合粉末を配合した実施例18のファンデーションは、肌の凹凸や色彩的な欠点を補正すると共に透明感のある自然な仕上りを与えるものであった。さらに、使用感触においてもなめらかな軽い感触を有していた。

【0071】

これに対し、比較例1の粉末を配合した比較例4のファンデーションでは、肌の凹凸が補正されず、さらに透明感及び自然な仕上りについても十分な結果が得られなかった。また、干渉系雲母チタンを配合した比較例5のファンデーションでは、肌の凹凸が目立ってチカチカ感があり、透明感のある自然な仕上りが得られなかった。

【0072】

【表3】

パウダーファンデーション（水使用も可能な夏用粉末固型ファンデーション）

	実施例19	比較例6	比較例7
シリコーン処理マイカ	25	25	25
シリコーン処理セリサイト	17	17	17
シリコーン処理タルク	残余	残余	残余
シリコーン処理	8	—	—
青色干渉系複合粉末（実施例4）			
シリコーン処理複合粉末	—	8	—
（比較例1）			
シリコーン処理	—	—	8
青色干渉系雲母チタン			
シリコーン処理酸化チタン	10	10	10
球状PMMA粉末	4	4	4
パラベン	適量	適量	適量
ジメチルポリシロキサン	4	4	4
メチルフェニルポリシロキサン	1	1	1
ワセリン	3	3	3

オクチルメトキシシナメート	3	3	3
ソルビタンジイソステアレート	1	1	1
抗酸化剤	適量	適量	適量
香料	適量	適量	適量
肌の凹凸の補正効果	○	×	×
肌の色彩の補正効果	○	△	△
仕上りの透明感	◎	△	×
仕上りの自然さ	◎	△	×
使用感触（なめらかさ）	○	○	△

【 0 0 7 3 】

表 3 から明らかなように、実施例 4 の複合粉末を配合した実施例 1 9 のファンデーションは、肌の凹凸や色彩的な欠点を補正すると共に透明感のある自然な仕上りを与えるものであった。さらに、使用感触においてもなめらかな軽い感触を有していた。

【 0 0 7 4 】

これに対し、比較例 1 の粉末を配合した比較例 6 のファンデーションでは、肌の凹凸が補正されず、さらに透明感及び自然な仕上りについても十分な結果が得られなかった。また、干渉系雲母チタンを配合した比較例 7 のファンデーションでは、肌の凹凸が目立ってチカチカ感があり、透明感のある自然な仕上りが得られなかった。

【 0 0 7 5 】

【表 4】

フェースパウダー（白粉）

	実施例 2 0	実施例 2 1	実施例 2 2
タルク	残余	残余	残余
マイカ	2 0	2 0	2 0
板状硫酸バリウム	5	5	5
赤色干渉系複合粉末（実施例 1）	1 0	—	—
赤色干渉系複合粉末（実施例 5）	—	1 0	—

赤色干渉系複合粉末（実施例 7）	—	—	1 0
微粒子酸化チタン	3	3	3
球状シリコン粉末	3	3	3
ワセリン	1	1	1
スクワラン	3	3	3
エステル油	1	1	1
パラベン	適量	適量	適量
酸化防止剤	適量	適量	適量
香料	適量	適量	適量
肌の凹凸の補正効果	○	△	◎
肌のくすみの補正効果	◎	◎	△
仕上りの透明感	◎	○	△
仕上りの自然さ	○	△	○
使用感触（なめらかさ）	○	△	◎

【 0 0 7 6 】

表 4 から明らかなように、実施例 1，5，7 の複合粉末を配合した実施例 2 0，2 1，2 2 のフェースパウダーは、肌の凹凸や色彩的な欠点を補正すると共に透明感のある自然な仕上りを与えるものであった。さらに、使用感触においてもなめらかな軽い感触を有していた。

以下、実施を行った他の処方を示す。

【 0 0 7 7 】

【表 5】

○／W型乳化クリームファンデーション

	実施例 2 3
タルク	8
セリサイト	7
赤色干渉系複合粉末（実施例 1）	6
酸化チタン	1 0
ペンガラ	0. 3

黄酸化鉄	1. 2
黒酸化鉄	0. 6
球状ポリエチレン粉末	6
スクワラン	1 0
オリーブ油	1 0
ステアリン酸	2
グリセリルモノステアレート	2
P O E (4 0) モノステアリン酸	2
ソルピタン	
グリセリン	5
トリエタノールアミン	0. 8
p H調整剤	適量
防腐剤	適量
イオン交換水	残余

【 0 0 7 8 】

【表 6】

ルースパウダー（粉末状白粉）

実施例 2 4

タルク	残余
合成マイカ	6
板状アルミナ	6
赤色干渉系複合粉末（実施例 9）	1 2
球状ナイロン粉末	4
スクワラン	3
パラベン	適量
香料	適量

【 0 0 7 9 】

【表 7】

パウダーファンデーション

実施例 2 5

セリサイト	1 7
合成マイカ	1 0
タルク	残余
赤色干渉系複合粉末（実施例 1 0）	6
酸化チタン	1 0
ベンガラ	0. 8
黄酸化鉄	2
黒酸化鉄	0. 1
亜鉛華	2
シリコーン弾性粉末	2
ジメチルポリシロキサン	3
流動パラフィン	5
ワセリン	5
ソルピタンセスキイソステアレート	1
パラベン	適量
酸化防止剤	適量
香料	適量

【 0 0 8 0 】

【表 8】

W/O 乳化型美容液

実施例 2 6

シクロメチコン	3 0
ジメチコン	2
アルキル変性ポリエーテルシリコーン	2
シリコーンレジン	0. 2
抗酸化剤	適量
オクチルメトキシシンナメート	2
ビタミン E 誘導体（血行促進剤）	0. 5

アルブチン酸（美白剤）	1
レチノール（抗シワ剤）	1
赤色干渉系複合粉末（実施例 9）	2
シリコーン処理硫酸バリウム	3
カチオン変性ベントナイト	2
タルク	5
PMMA 球状樹脂粉末	5
イオン交換水	残余
グリセリン	4
ポリエチレングリコール	1
防腐剤	適量
安定化剤	適量
香料	適量

【 0 0 8 1 】

【表 9】

〇／W 乳化型美容液実施例 2 7

イオン交換水	残余
グリセリン	2 0
1， 2 - ペンタンジオール	3
1， 3 - ブチレングリコール	1
流動パラフィン	7. 5
イソステアリン酸	0. 5
ニコチン酸誘導体（血行促進剤）	0. 5
キイチゴエキス（血行促進剤）	0. 7
アスコルビン酸（美白剤）	0. 2
カミツレエキス（美白剤）	0. 1
ユキノシタエキス（美白剤）	0. 3
フタル酸ジ 2 エチルヘキシル	0. 3

ポリエチレンパウダー	4
テフロン TM パウダー	4
赤色干渉系複合粉末（実施例 1 0）	1
安定化剤	適量
香料	適量

【 0 0 8 2 】

表 5 ～ 9 の化粧料はいずれも肌の凹凸や色彩的な欠点を補正すると共に透明感のある自然な仕上りを与えるものであった。さらに、使用感触においてもなめらかな軽い感触を有していた。

【 0 0 8 3 】

【発明の効果】

以上説明したように本発明によれば、突起状の硫酸バリウム粒子が薄片状基板粉末の表面に付着した複合粉末が得られ、これを配合したメイクアップ化粧料を使用すれば肌の凹凸が均一に補正され、自然で美しい仕上がりが見られる。

さらに、薄片状基板粉末として雲母チタン等の干渉色を発現する薄片状粉末を用いて得られた複合粉末では、これを配合したメイクアップ化粧料を使用すれば肌の凹凸及び色彩的な欠点が均一に補正され、透明感のある自然で美しい仕上がりが見られる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

実施例 1 の複合粉末表面の SEM 写真である。

【図 2】

実施例 5 の複合粉末表面の SEM 写真である。

【図 3】

実施例 7 の複合粉末表面の SEM 写真である。

【図 4】

実施例 8 の複合粉末表面の SEM 写真である。

【図 5】

実施例 9 の複合粉末表面の SEM 写真である。

【図 6】

実施例 1 0 の複合粉末表面の S E M 写真である。

【図 7】

実施例 1 1 の複合粉末表面の S E M 写真である。

【図 8】

実施例 1 2 の複合粉末表面の S E M 写真である。

【図 9】

実施例 1 3 の複合粉末表面の S E M 写真である。

【図 1 0】

実施例 1 4 の複合粉末表面の S E M 写真である。

【図 1 1】

実施例 1 5 の複合粉末表面の S E M 写真である。

【図 1 2】

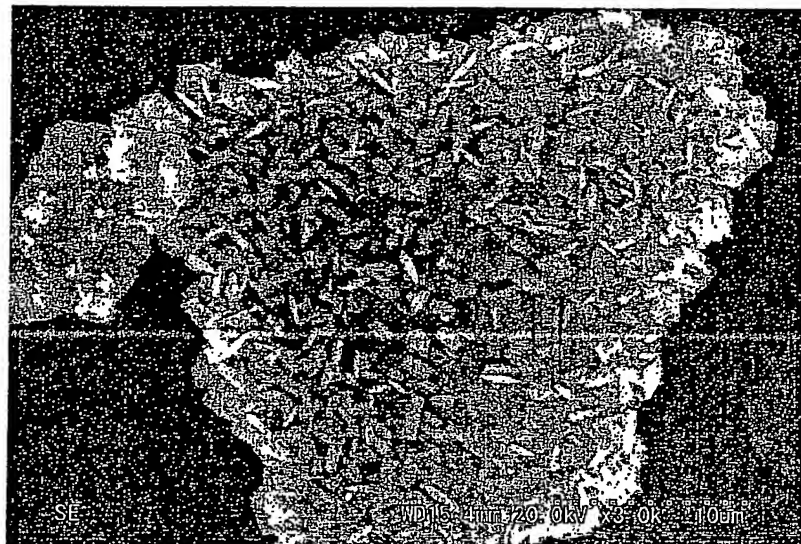
実施例 1 6 の複合粉末表面の S E M 写真である。

【書類名】 図面

【図 1】

実施例 1

(A)

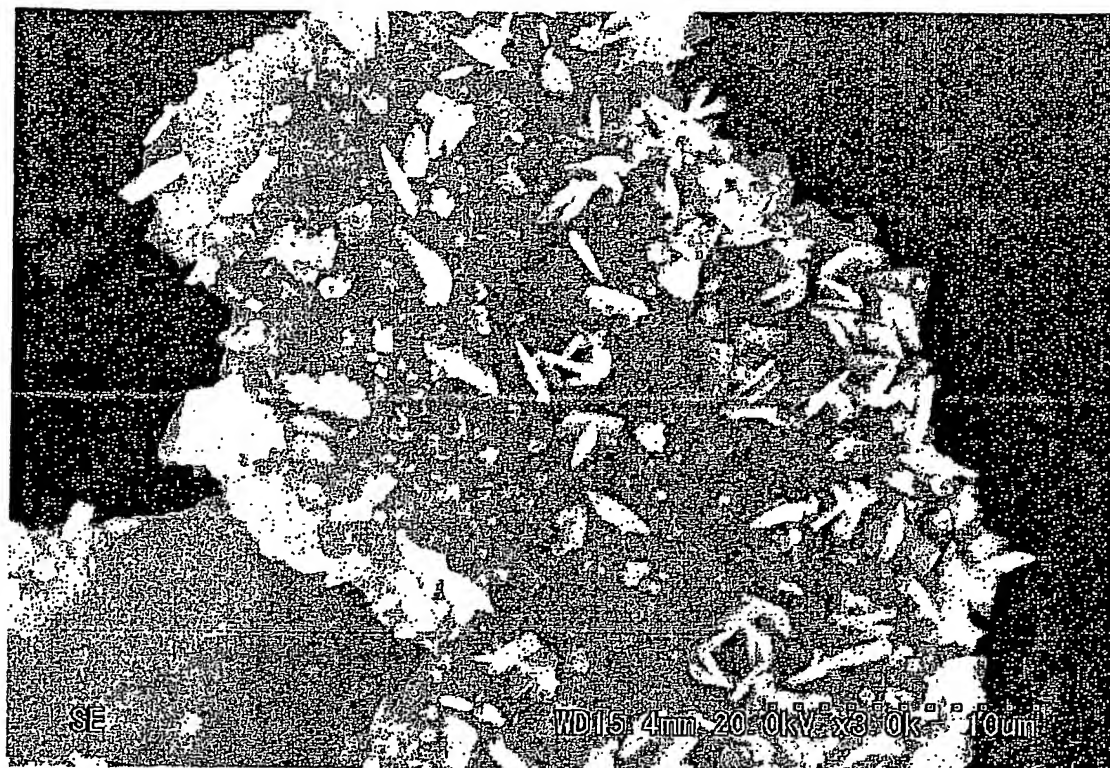


(B)



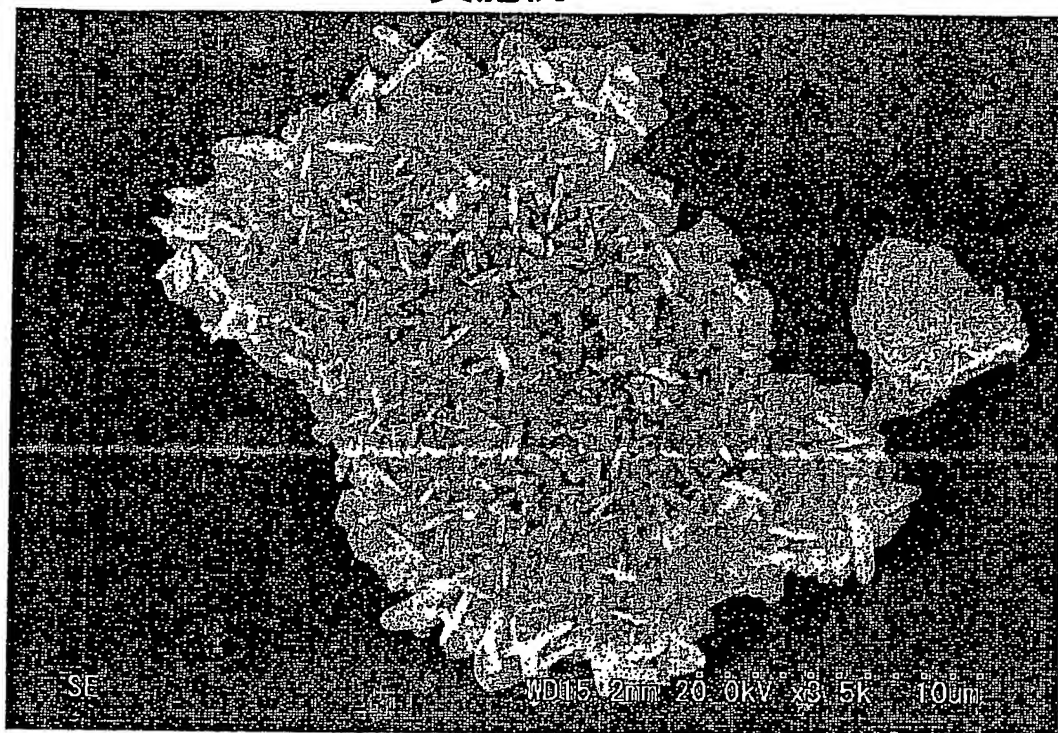
【図 2】

実施例 5



【図3】

実施例7



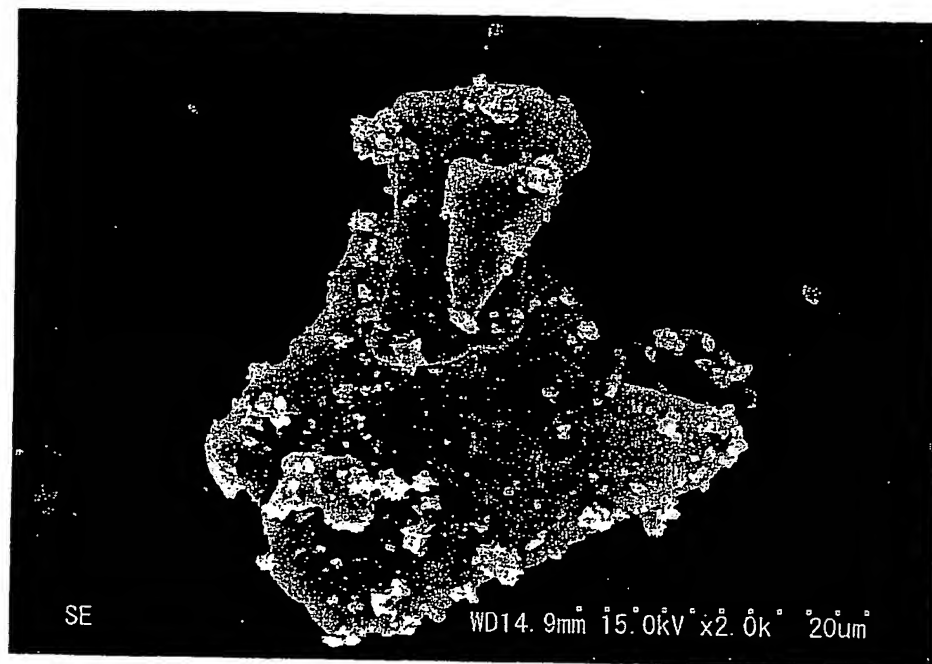
【図 4】

実施例 8



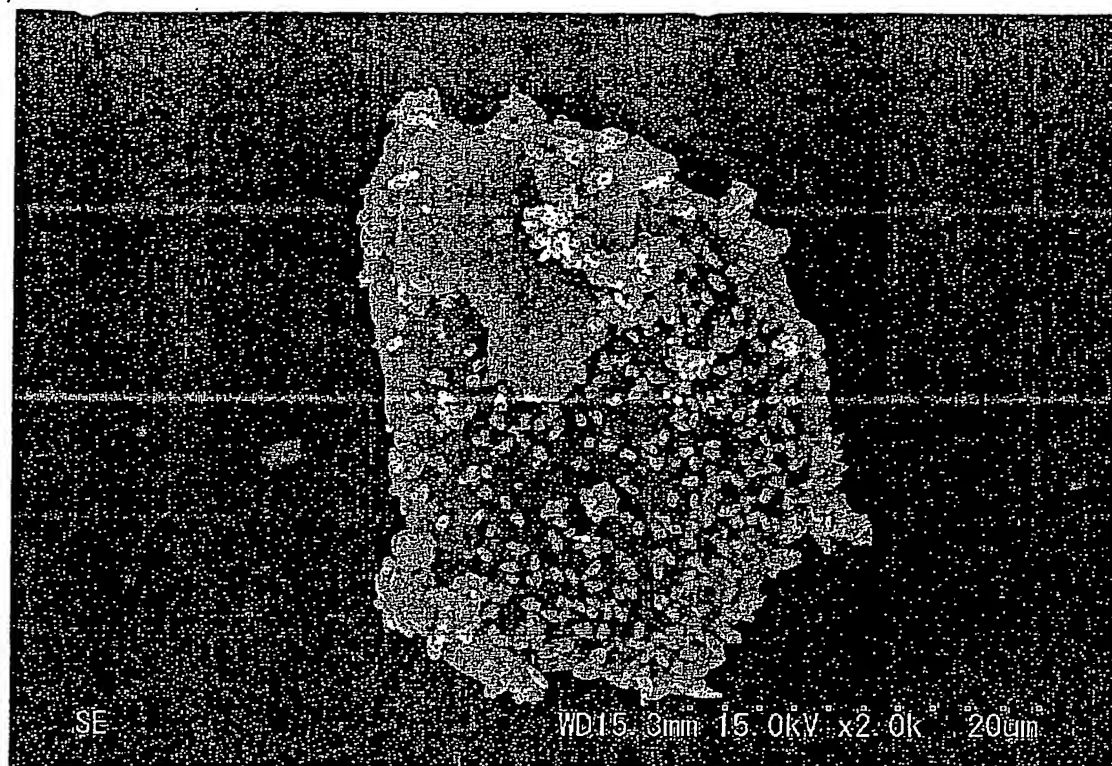
【図5】

実施例 9



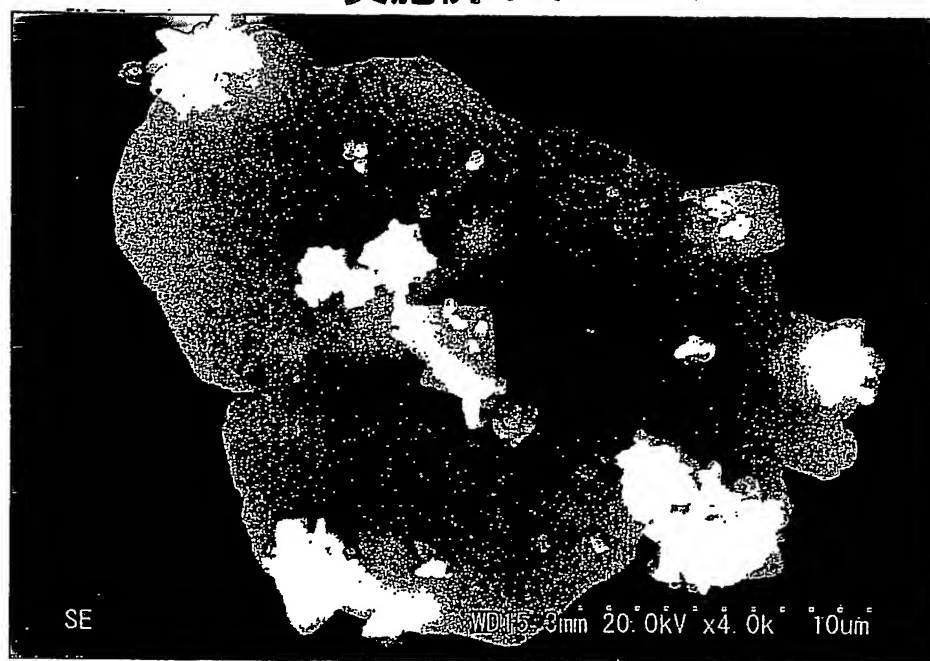
【図 6】

実施例 10



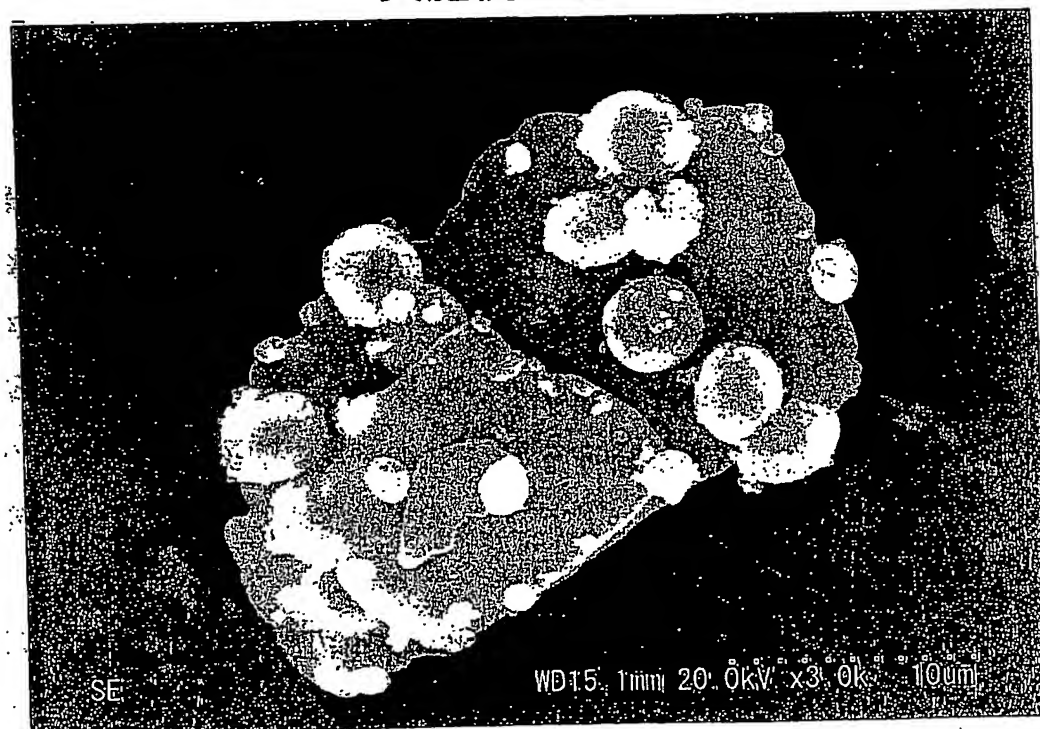
【図 7】

実施例 1.1



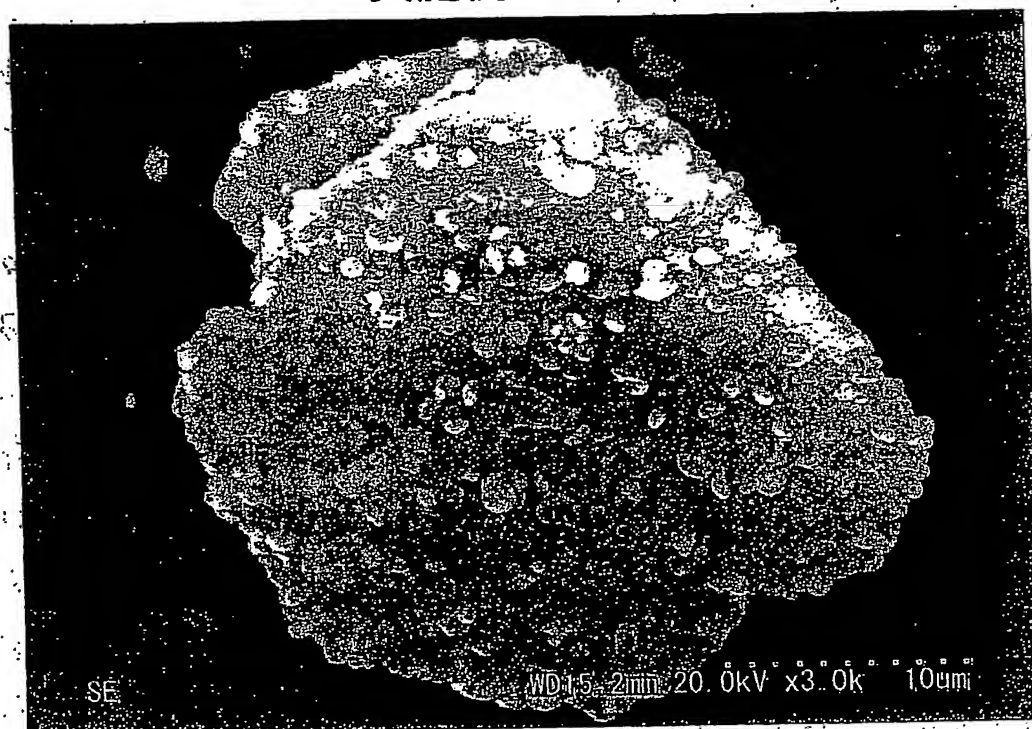
【図 8】

実施例 1.2



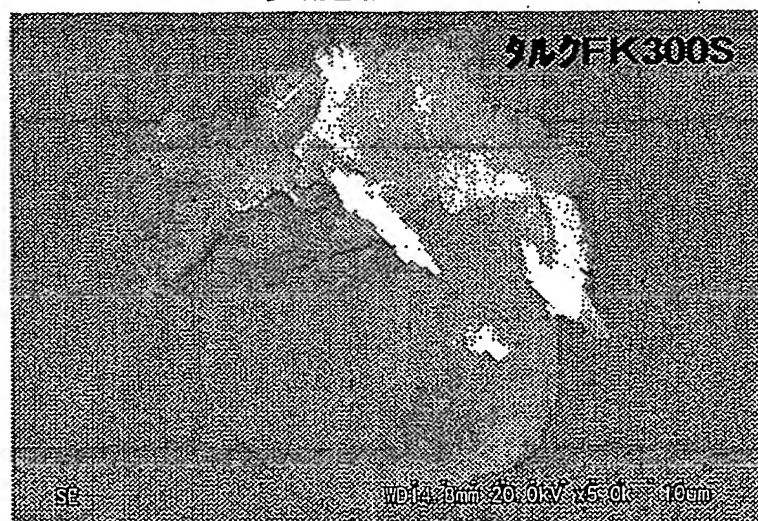
【図9】

実施例 1 3



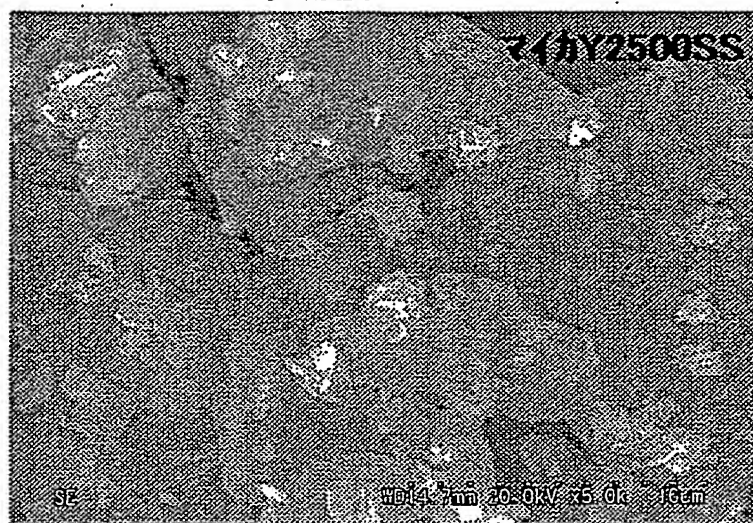
【図10】

実施例 1 4



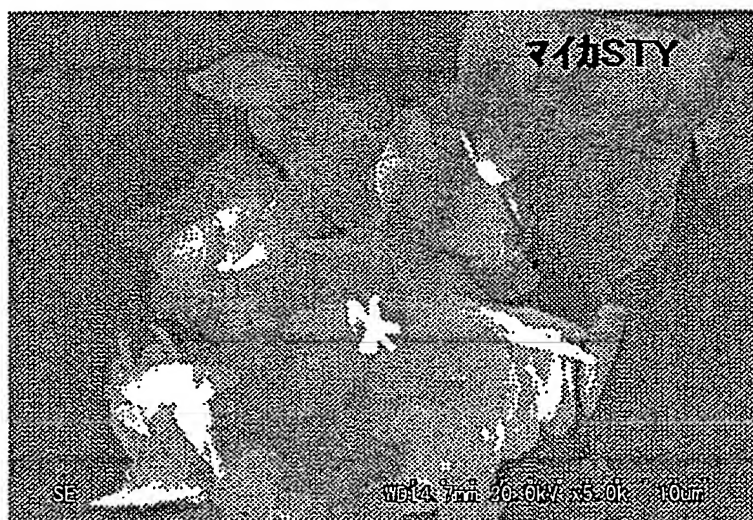
【図11】

実施例15



【図12】

実施例16



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 本発明の目的は、化粧品に配合することにより肌の凹凸や色彩的な欠点を補正して自然な仕上りを与える複合粉末、それを配合したメイクアップ化粧品、及び複合粉末の製造方法を提供することにある。

【解決手段】 薄片状基板粉末と、該基板粉末の表面に突起状に付着した硫酸バリウム粒子を含むことを特徴とする複合粉末、それを配合したメイクアップ化粧品、及び複合粉末の製造方法。

【選択図】 図 1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000001959]

1. 変更年月日	1990年 8月27日
[変更理由]	新規登録
住 所	東京都中央区銀座7丁目5番5号
氏 名	株式会社資生堂

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

☐ BLACK BORDERS

☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES

☒ FADED TEXT OR DRAWING

☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING

☐ SKEWED/SLANTED IMAGES

☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS

☐ GRAY SCALE DOCUMENTS

☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT

☒ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY

☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.